

## Organische Leuchtdiode, Herstellungsverfahren dazu und Anwendungen

**Patent number:** DE10140991  
**Publication date:** 2003-03-13  
**Inventor:** BRABEC CHRISTOPH JOSEF (DE); SCHEWE HERBERT (DE); WITTMANN GEORG (DE)  
**Applicant:** OSRAM OPTO SEMICONDUCTORS GMBH (DE)  
**Classification:**  
- **international:** H01L51/20; H01L51/40; H01L51/10; H01L51/00  
- **European:** H01L25/04E; H01L27/32  
**Application number:** DE20011040991 20010821  
**Priority number(s):** DE20011040991 20010821

**Also published as:**

WO03019658 (A3)



WO03019658 (A2)

**Abstract of DE10140991**

The invention relates to an organic light emitting diode (OLED) comprising at least one substrate, one anode, one perforated transport layer, one emitting layer, one cathode and one capsule. According to the invention, an energy carrier is integrated into the LED to supply the voltage causing the LED to light. The energy carrier can be a battery (energy accumulator) or an energy converter (photovoltaic element).

---

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide



⑯ BUNDESREPUBLIK

DEUTSCHLAND



DEUTSCHES

PATENT- UND

MARKENAMT

⑯ Offenlegungsschrift  
⑯ DE 101 40 991 A 1

⑯ Int. Cl. 7:  
H 01 L 51/20  
H 01 L 51/40  
H 01 L 51/10  
H 01 L 51/00

⑯ Aktenzeichen: 101 40 991.5  
⑯ Anmeldetag: 21. 8. 2001  
⑯ Offenlegungstag: 13. 3. 2003

DE 101 40 991 A 1

⑯ Anmelder:  
OSRAM Opto Semiconductors GmbH, 93049  
Regensburg, DE  
⑯ Vertreter:  
Epping, Hermann & Fischer GbR, 80339 München

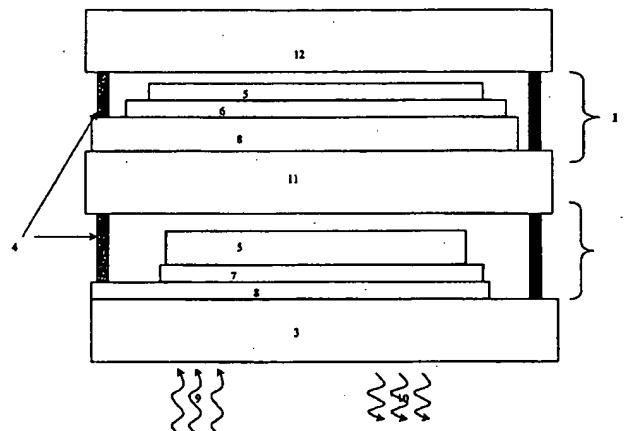
⑯ Erfinder:  
Brabec, Christoph Josef, Dr., 91052 Erlangen, DE;  
Schewe, Herbert, Prof.Dr., 91074 Herzogenaurach,  
DE; Wittmann, Georg, Dr., 91074 Herzogenaurach,  
DE  
⑯ Entgegenhaltungen:  
US 60 28 327  
WO 01 83 067 A2  
JP 20 01-182 770 A

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑯ Organische Leuchtdiode, Herstellungsverfahren dazu und Anwendungen

⑯ Die Erfindung betrifft eine organische Licht emittierende Diode (OLED) oder auch Leuchtdiode genannt, die zumindest ein Substrat, eine Anode, eine Lochtransportsschicht, eine emittierende Schicht, eine Kathode und eine Verkapselung umfasst. Es wird vorgeschlagen, dass in die OLED ein Energieträger integriert wird, über den die Spannung, die die OLED zum Leuchten bringt, geliefert wird. Der Energieträger kann eine Batterie (Energiespeicher) oder ein Energiewandler (photovoltaisches Element) sein.



DE 101 40 991 A 1

## Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft eine organische Licht emittierende Diode (OLED) oder auch Leuchtdiode genannt, die zumindest ein Substrat, eine Anode, eine Emitterschicht und eine Kathode umfasst mit einer neuartigen Energieversorgung.

[0002] Es sind Leuchtdioden bekannt, die durch Anlegen einer Spannung Lumineszenz bei gleichzeitigem Stromfluss zeigen. Nachteilig an den bisher bekannten OLEDs ist, dass sie ihre Energie ausschließlich über eine externe elektrische Leistungsversorgung erhalten.

[0003] Aufgabe der Erfindung ist es, eine OLED mit einem integrierten Energieträger zu schaffen, so dass die OLED mobil, d. h. zumindest teilweise unabhängig von einer Spannungsquelle betrieben werden kann.

[0004] Gegenstand der Erfindung ist eine organische Licht emittierende Diode (OLED), zumindest ein Substrat, eine Anode, eine Emitterschicht und eine Kathode umfassend, wobei in die OLED ein Energieträger integriert ist, so dass entweder durch Schaltung und/oder durch Umwelteinfluss eine Spannung an die OLED angelegt wird. Außerdem sind Gegenstand der Erfindung Herstellungsverfahren zur Herstellung einer OLED mit integriertem Energieträger und schließlich sind Gegenstand der Erfindung die Verwendungen solcher OLEDs in Displays und/oder in electronic paper, wie sie beispielsweise in "Rubber Stamping for Plastic Electronics and fiber Optics" von John A. Rogers in MRS (Materials Research Society) Bulletin/July 2001 Seiten 530 bis 532 beschrieben sind.

[0005] Als Energieträger kann ein Energiespeicher, wie z. B. von der Art einer Batterie oder Akku und/oder ein Energiewandler wie z. B. eine photovoltaische Zelle (= Solarzelle) zum Einsatz kommen.

[0006] Als Umwelteinfluss kann beispielsweise Strahlung (insbesondere Lichtstrahlung im sichtbaren Spektrum wie z. B. erzeugt von gängigen Beleuchtungskörpern oder auch durch Sonnenstrahlung), Wärme, Druck oder eine Schallquelle eingesetzt werden.

[0007] Nach einer Ausgestaltung der OLED wirkt der Energieträger, z. B. die photovoltaische Zelle so, dass sie gleichzeitig ein Photodetektor ist, der erkennt, wann z. B. das Handy aus der Tasche genommen und/oder die Handytasche geöffnet wurde. Hier kann z. B. ein Netzbetreiber des Handys, der relativ viel Strom braucht, erst dann eingespielt werden, wenn die Umgebungshelligkeit entsprechend ist. Wenn das Handy im Licht ist, aber nicht in Betrieb, liefert die Solarzelle die Energie und das Signal, um den Netzbetreiber bei Bedarf auf das Display einzuspielen.

[0008] Mittels einer Schaltung kann der Energieträger, der zumindest auch als Energiespeicher wirken müsste, zugeschaltet oder abgeschaltet werden.

[0009] Da für den Betrieb einer OLED nur niedrige Energiemengen erforderlich sind, kann die elektrische Leistung, zum Teil oder auch im Ganzen über photovoltaische Zellen als Energiewandler erzeugt werden. Dabei empfehlen sich semitransparente photovoltaische Elemente, die auf der transparenten Seite der OLED angeordnet werden können und zwar so, dass beispielsweise die gesamte Fläche der OLED zur Energiewandlung nutzbar gemacht wird.

[0010] Semitransparente photovoltaische Elemente haben bevorzugt eine photoaktive Schicht, die nicht auf Silizium basiert sondern die auf der Basis von organischem Material aufgebaut ist.

[0011] Eine geeignete photoaktive Schicht (Layer) ist unter anderem aus der US 5,454,880 und der US 5,333,183 bekannt und kann eine oder mehrere halbleitende Kunststoffe, die monomer, oligomer und/oder polymer vorliegen kön-

nen, sowie anorganische Teilchen und/oder Nanoteilchen umfassen. Es kann eine Mischung aus 2 oder mehreren konjugierten organischen Kunststoffen, anorganischen Teilchen und/oder Nanoteilchen mit ähnlichen oder unterschiedlichen Elektronenaffinitäten und/oder mit ähnlichen oder unterschiedlichen Bandlücken vorliegen.

[0012] Dünne Schichten von organischen Molekülen, Oligomeren und molekularen Mischungen können beispielsweise durch thermische Verdampfung, chemical/physical 10 Vapor deposition (CVD) erzeugt werden.

[0013] Dünne Schichten von konjugierten Polymeren und Mischungen mit konjugierten Polymeren können durch Spincoaten (Lösungsschleudern), aber auch durch andere gängige Druckmethoden wie z. B. Siebdruck, Tintenstrahldrucken, Flexodruck, Tiefdruck, Hochdruck, Flachdruck (oder andere/ähnliche Lösungsmittelabscheidungsprozesse) erzeugt werden. Wenn Polymere verwendet werden, können diese Schichten auch auf flexible Substrate abgeschieden werden.

[0014] Beispiele typischer halbleitender konjugierter Polymere beinhalten Polyacetylene (PA) und Derivate davon, Polyisothianaphthene (PITN) und Derivate davon, Polythiophene (PT) und Derivate davon, Polypyrrrole (PPr) und Derivate davon, Poly(2,5-theinylenevinylene) (PTV) und Derivate davon, Polyfluorene (PF) und Derivate davon, Poly(phenylene) (PPP) und Derivate davon, Poly(phenylene vinylene) (PPV) und Derivate davon, als auch Polyquinoline und Derivate davon, Polykarbazole und Derivate davon, halbleitendendes Polyanilin (Leukoemeraldine und/oder

30 Leukoemeraldine Base).

[0015] Beispiele für Akzeptoren in Donor/Akzeptor Polymermischungen schließen ein, aber sind nicht limitiert auf Poly-(cyanophenylenevinylene), Fullerene wie C<sub>60</sub> und dessen funktionelle Derivate (wie PCBM, PCBR) und organische Moleküle, organometallische Moleküle oder inorganische Nanoteilchen (wie z. B. CdTe, CdSe, CdS, CIS).

[0016] Des weiteren können verwendete Solarzellen auch in zwei separaten Schichten aufgebaut werden; in denen der Donor vom Akzeptor räumlich getrennt ist (z. B.: PT/C<sub>60</sub> oder PPV/C<sub>60</sub>).

[0017] Nach einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung hat die OLED eine Schicht aus semitransparenten photovoltaischen Elementen, wobei eine der Elektroden der OLED auch dem photovoltaischen Element als Elektrode dient. Dabei werden nicht nur Herstellungskosten gespart, weil die Herstellung einer Elektrodenschicht für das photovoltaische Element entfällt, sondern es wird auch der Material- und Platzbedarf für den Energiewandler erniedrigt.

[0018] Nach einer bevorzugten Ausführungsform ist der Energieträger transparent oder zumindest semitransparent. Wenn der Energiewandler photovoltaische Zellen umfasst und/oder transparent bzw. semitransparent ist, dann empfiehlt sich eine Anordnung des Energiewandlers innerhalb der OLED so, dass der Energiewandler auf der der Lichtquelle zugewandten Seite der emittierenden Schicht der OLED angebracht ist, so dass keine Beeinträchtigung der Strahlung auf die photovoltaischen Zellen entsteht.

[0019] Als Anode für eine OLED wird beispielsweise das transparente ITO (Indium-Zinn-Oxid) oder Gold (Au) verwendet.

[0020] Bevorzugt hat die OLED noch eine Lochtransportschicht. Dafür wird beispielsweise eine Schicht von leitfähigem, semitransparentem PANI und/oder PEDOT/PSS verwendet.

[0021] Als Emitterschicht und/oder Elektronenleitschicht wird beispielsweise PPV und/oder PF sowie deren Derivate verwendet.

[0022] Als Kathode wird beispielsweise Ca, Sm, Y, Mg,

Ak, In, Cu, Ag, Au, LiF/Al, LiF/Ca verwendet.

[0023] Bevorzugt hat die OLED noch eine Verkapselung. Dazu dient beispielsweise eine Glasschicht die mit der OLED (Solarzelle) verklebt, laminiert etc. wird.

[0024] Nach einer bevorzugten Ausführungsform gibt es zwischen der OLED und der zumindest einen Solarzelle eine semitransparente Isolationsschicht. Diese Schicht kann neben der Verkapselung und elektrischen Isolation auch noch andere Funktionalitäten haben, z. B. Sauerstoff- und/oder Wasserstabilisatoren, Polarisatoren für OLEDs Farbfilter, Antireflexionsschicht für OLED und/oder Solarzellen, Brechungsindexmatcher etc.

[0025] Da es bei den OLED Displays öfters Schwierigkeiten gibt, reine Farben zu erhalten, können die Solarzellen auch als Farbfilter eingesetzt werden, um aus der gesamten OLED Emission den störenden Teil herauszufiltern.

[0026] Im Folgenden wird die Erfindung noch anhand einiger Figuren erläutert, die bevorzugte Ausführungsbeispiele mit zumindest einem photovoltaischen Element als Energiewandler zeigen.

[0027] Fig. 1 bis 6 zeigen die Kombination einer OLED mit einer semitransparenten Solarzelle.

[0028] In Fig. 1 erkennt man die Kombination einer OLED 1 mit einer semitransparenten Solarzelle 2, bei der sowohl die Solarzelle 2 als auch die OLED 1 separat produziert werden. Von unten nach oben erkennt man das Substrat 3 (beispielsweise Glas oder eine flexible Folie) mit einem Spacer 4 oder Abstandshalter. Durch dieses Substrat dringt der Lichteinfall (Pfeile 9 und in umgekehrter Richtung die Emission der OLED, angedeutet durch die Pfeile 10. Auf diesem Substrat 3 befindet sich die positive Elektrode, die Anode 8, die z. B. aus ITO (indium tin oxide, d. h. Indium Zinn Oxid) sein kann, auf der Anode 8 die semitransparente photoaktive Schicht 7 der Solarzelle 2 (den Absorber) und die Kathode 5, die z. B. aus Calcium (Ca) sein kann. Die Solarzelle 2 wird durch die semitransparente Isolationsschicht 11 versiegelt. Spacer 4 schützen die Kathode 5 vor Beschädigung. Die semitransparente Isolationsschicht 11 dient der OLED 1 als Substrat. Darauf wird die OLED 1 aufgebaut: Zu erkennen ist wieder von unten nach oben zunächst die Anode 8, dann die photoaktive Schicht der OLED 6 (der Emitter), darauf die Kathode 5 und schließlich die Verkapselung oder Versiegelung 12, die z. B. aus Glas ist.

[0029] Die OLED 1 kann dann zum Beispiel versiegelt werden und die semitransparente Isolationsschicht 11 (oder das Substrat 11) der OLED 1 wiederum dient als Versiegelung für die Solarzelle 2.

[0030] Fig. 2 gleicht der Fig. 1 weitgehend. Zu sehen ist die Kombination einer OLED 1 mit einer semitransparenten Solarzelle 2, bei der sowohl die Solarzelle 2 als auch die OLED 1 auf dem gleichen Substrat, der semitransparenten Isolationsschicht 11, die dann beidseitig beschichtet ist, produziert werden. Die OLED 1 und auch die Solarzelle 2 können dann separat versiegelt werden. An die semitransparente Isolationsschicht 11 grenzen dabei beidseitig die Anoden 8 der beiden Bauelemente OLED 1 und Solarzelle 2 an, darauf jeweils deren photoaktive Schichten 6 und 7 und daran schließen deren Kathoden 5 an.

[0031] Fig. 3 zeigt einen Aufbau, bei dem über eine Verbindungselektrode oder Ableitungselektrode 13 die OLED 1 selbsttragend auf der oberen Versiegelungsschicht 12, die z. B. aus Glas sein kann, aufgebracht ist. Die OLED 1 wird auf die Ableitungselektrode 13, die z. B. eine Silberpaste, ein Aluminium-Klebestreifen, ein Carbon Black oder eine sonstige Zwischenschicht sein kann, durch Drucken Kleben etc. aufgebracht. An die Verbindungs- oder Ableitungselektrode 13 schließt sich wie bei den Fig. 1 und 2, die Kathode 5, die photoaktive Schicht 6 und die semitransparente Isola-

tionsschicht 11, die ein dünnes Substrat ist, das auch flexibel sein kann, an. Die Isolationsschicht 11 kann hier auch als planarization Layer bezeichnet werden.

[0032] Durch die Spacer 4 wird die selbsttragende OLED 1 von der unteren semitransparenten Solarzelle 2 getrennt. Der Aufbau der semitransparenten Solarzelle 2 entspricht dem aus Fig. 1.

[0033] Hier sieht man die Kombination einer OLED 1 mit einer semitransparenten Solarzelle 2, bei der die Solarzelle 2 separat produziert wird. Die OLED 1 kann entweder auf einem optionalen eigenen Substrat 12 produziert und versiegelt werden und dann mit der Verbindungselektrode 13, die gleichzeitig auch eine Ableitungselektrode ist, verbunden werden oder die beiden einzelnen Elemente werden miteinander durch die Spacer 4 versiegelt.

[0034] Das in Fig. 4 gezeigte Beispiel ähnelt wieder in wesentlichen Teilen dem Aufbau aus Fig. 1, wobei mittig als Substrat der OLED 1 und Verkapselung der Solarzelle 2 ein dünnes Substrat gezeigt wird, das optional auch mit einer Getter Funktion ausgestattet sein kann. Dies ist die Kombination einer OLED 1 mit einer semitransparenten Solarzelle 2, bei der die Solarzelle 2 separat produziert wird. Die OLED 1 wird z. B. in umgekehrter Reihenfolge aufgebaut. Die beiden einzelnen Elemente werden miteinander versiegelt.

[0035] In Fig. 5 werden Elemente, die aus den Fig. 3 und 4 bekannt sind, verbunden. Hier können die Einzelemente OLED 1 und Solarzelle 2 optional monolithisch miteinander aufgebaut werden. Zuerst wird die Solarzelle 2 auf dem Substrat 3, das mit der Anode 8 beschichtet ist, gefertigt und mit einer semitransparenten Isolatorschicht 11, die ein optionaler planarization Layer und/oder ein dünnes Substrat das auch flexibel und/oder mit Getter Funktion sein kann, versiegelt. Auf diese Schicht 11 wird die OLED 1 aufgebaut.

[0036] Der gesamte Aufbau, der die OLED 1 und die Solarzelle 2 umfasst, wird zum Schluss mittels einer passenden Verbindungselektrode 13 versiegelt. Ebenso ist denkbar, dass die semitransparente Isolationsschicht 11 weggelassen wird und die OLED 1 auf der Anode 8 der Solarzelle 2 aufgebaut wird. OLED 1 und Solarzelle 2 nutzen dann die gleiche Elektrode. Diese Ausführungsform zeichnet sich durch besondere Kompaktheit aus.

[0037] Die semitransparente Isolationsschicht 11 erlaubt auch, die beiden Zellen einzeln zu fertigen und dann mit Hilfe dieser Schicht 11 zu verkleben.

[0038] Es handelt sich also um die Kombination einer OLED 1 mit einer semitransparenten Solarzelle 2 bei der die Einzelemente monolithisch miteinander aufgebaut werden (vgl. Fig. 5). Nur erfolgt hier der Aufbau in umgekehrter Reihenfolge. Zuerst wird die OLED 1 auf einem passenden Substrat gefertigt, mit einer (optionalen) semitransparenten Isolatorschicht 11 passiviert oder versiegelt, wobei auf der optionalen Isolatorschicht 11 oder auf der Anode 8 der OLED 1 die Solarzelle 2 aufgebaut wird. Das ganze Bauelement wird zum Schluss mittels einer passenden Verbindungselektrode 13 versiegelt.

[0039] Die optionale Isolationsschicht 11 erlaubt auch, die OLED 1 und die Solarzelle 2 einzeln zu fertigen und dann mit Hilfe der Isolationsschicht 11 zu verkleben.

[0040] Es ist wieder denkbar, dass die semitransparente Isolationsschicht 11 weggelassen wird und die OLED 1 auf der Anode 8 der Solarzelle 2 aufgebaut wird. OLED 1 und

Solarzelle 2 würden wieder die gleiche Anode 8 nutzen.

[0041] Die funktionierende OLED kann zudem noch mehrere Module umfassen, so wird eine Steuerelektronik in den meisten Fällen unumgänglich sein, ebenso werden vermutlich mehrere Solarzellen verschaltet, um die nötige Betriebsspannung zu liefern, die Solarzelle(n) kann aber auch in Kombination mit anderen Energieträgern zur Betriebsspannung beitragen.

[0042] Generell kann die semitransparente Isolations- 10 schicht 11 in diesen Strukturen die verschiedensten Funktionalitäten haben. Sie kann einen Sauerstoff- und/oder Wasser-Stabilisatoren, Polarisor(en) für OLEDs, eventuell auch Farbfilter, Antireflexionsschichten für OLEDs oder Solarzellen und/oder Brechungsexponenten für Solarzellen und/oder OLEDs etc. umfassen.

[0043] Obwohl in den Figuren nur Solarzellen als Energieträger beschrieben sind, soll die Erfindung keineswegs auf diese Art der Energieträger beschränkt werden, vielmehr sind Energiespeicher wie Akkus durchaus auch als bevorzugte Ausführungsformen zu beschreiben.

[0044] Die Zuteilung von Kathode/Anode in den Beispielen ist ebenso lediglich zufällig und soll den Umfang der Erfindung, die hier unter Schutz gestellt werden soll, nicht beschränken. Es ist dem Fachmann klar, dass ein funktions tüchtiges Device auch mit umgeänderter Elektrodenwahl zu erhalten ist.

[0045] Ebenso soll die hier gezeigte Anordnung Lichtquellesemistabile Solarzelle- OLED nicht beschränkend wirken, sondern es ist durchaus auch ein Aspekt der Erfindung, dass die OLED semitransparent gefertigt wird und der Energieträger nicht transparent ist und hinter der OLED angeordnet.

[0046] Die Erfindung betrifft eine organische Licht emittierende Diode (OLED) oder auch Leuchtdiode genannt, die zumindest ein Substrat, eine Anode, eine Lochtransport- 35 schicht, eine emittierende Schicht, eine Kathode und eine Verkapselung umfasst. Es wird vorgeschlagen, dass in die OLED ein Energieträger integriert wird, über den die Spannung, die die OLED zum Leuchten bringt geliefert wird. Der Energieträger kann eine Batterie (Energiespeicher) oder ein Energiewandler (photovoltaisches Element) sein.

#### Patentansprüche

1. Organische Licht emittierende Diode (OLED), zumindest ein Substrat, eine Anode, eine Emitterschicht und eine Kathode umfassend, wobei in die OLED zumindest ein Energieträger so integriert ist, dass entweder durch Schaltung und/oder durch Umwelteinfluss eine Spannung an die OLED angelegt wird.

2. OLED nach Anspruch 1, bei der zumindest eine Energieträger ein Energiewandler und/oder ein Energiespeicher ist.

3. OLED nach Anspruch 2, bei der der Energiewandler ein photovoltaisches Element umfasst.

4. OLED nach einem der Ansprüche 2 oder 3, bei der der Energiewandler eine Elektrode der OLED mitnutzt.

5. OLED nach einem der Ansprüche 2 oder 3, bei der eine semitransparente Isolationsschicht die OLED und den Energieträger trennt.

6. OLED nach Anspruch 5, bei der die semitransparente Isolationsschicht noch weitere Funktionalitäten erfüllt.

7. OLED nach einem der vorstehenden Ansprüche, bei der zumindest ein Energieträger zumindest semitransparent ist.

8. OLED nach einem der vorstehenden Ansprüche, bei der der Energieträger auf der Seite der emittierenden

Schicht der OLED angeordnet ist, die zu einer Lichtquelle zeigt.

9. Verfahren zur Herstellung einer OLED, zumindest ein Substrat, eine Anode, eine Emitterschicht und eine Kathode umfassend, wobei in die OLED zumindest eine Solarzelle als Energieträger integriert ist, zumindest folgende Arbeitsschritte umfassend:

Aufbau einer Solarzelle auf einem Substrat, Aufbau einer OLED auf einem weiteren Substrat, Verbindung der beiden Elemente so, dass das Substrat der OLED als Verkapselung der Solarzelle dient.

10. Verfahren zur Herstellung einer OLED, zumindest ein Substrat, eine Anode, eine Emitterschicht und eine Kathode umfassend, wobei in die OLED zumindest eine Solarzelle als Energieträger integriert ist, zumindest folgende Arbeitsschritte umfassend:

Aufbau einer Solarzelle auf einem Substrat, Verkapselung der Solarzelle, Aufbau einer OLED auf der Verkapselung der Solarzelle,

Verkapselung der kombinierten Solarzelle und OLED. 20 11. Verfahren zur Herstellung einer OLED, zumindest ein Substrat, eine Anode, eine Emitterschicht und eine Kathode umfassend, wobei in die OLED zumindest eine Solarzelle als Energieträger integriert ist, zumindest folgende Beschichtungen umfassend:

Auf ein Substrat wird eine negative Elektrode (Kathode), auf die Kathode wird eine photoaktive Schicht für eine Solarzelle, auf die photoaktive Schicht wird eine positive Elektrode (Anode),

auf die Anode eine photoaktive Schicht einer OLED, auf die photoaktive Schicht eine negative Elektrode und auf diese Schicht eine Verkapselung aufgebracht.

12. Verwendung einer OLED nach einem der vorstehenden Ansprüche in einem Display und/oder in einem "electronic paper".

Hierzu 6 Seite(n) Zeichnungen

Fig. 1

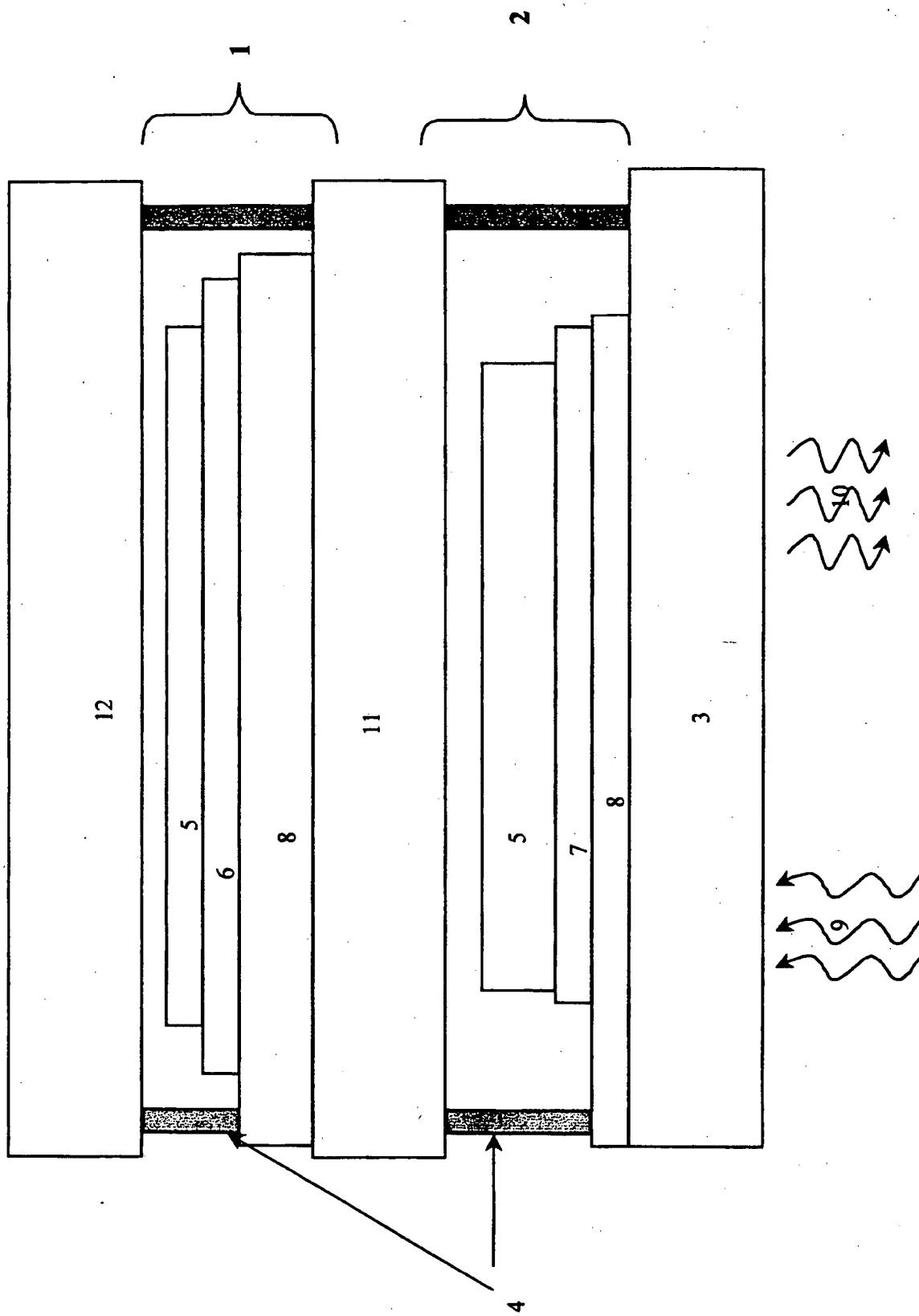
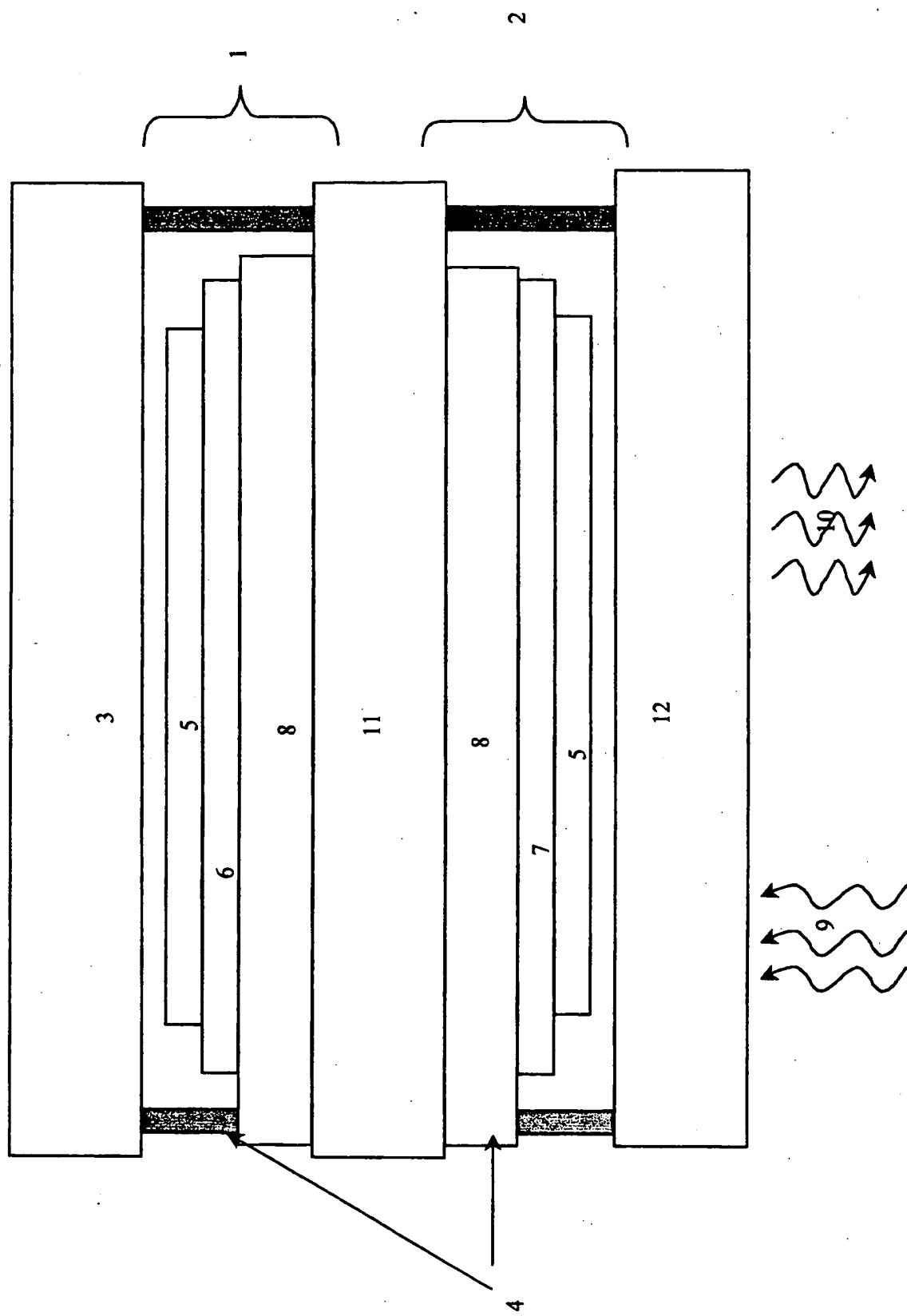


Fig. 2



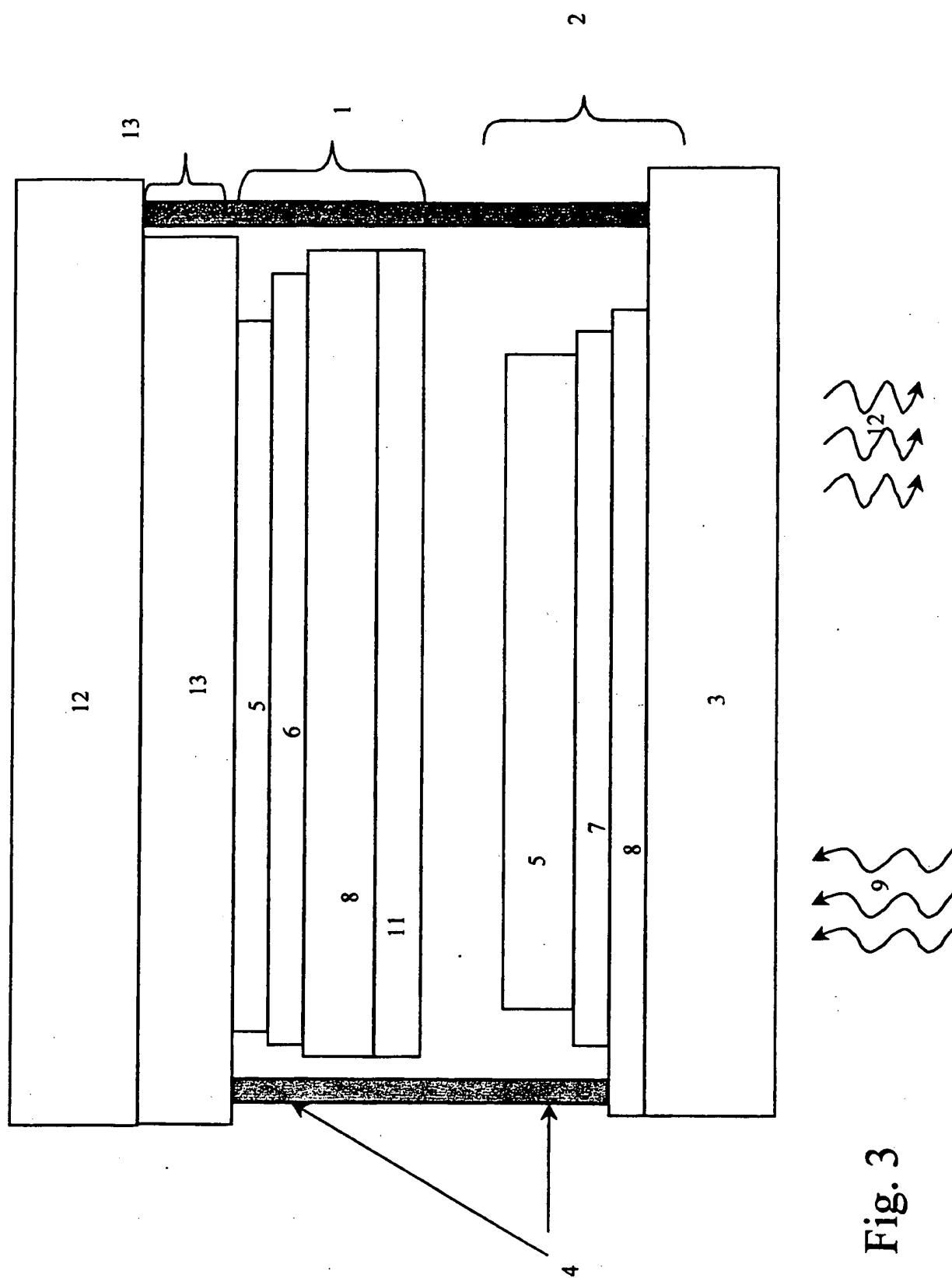


Fig. 3

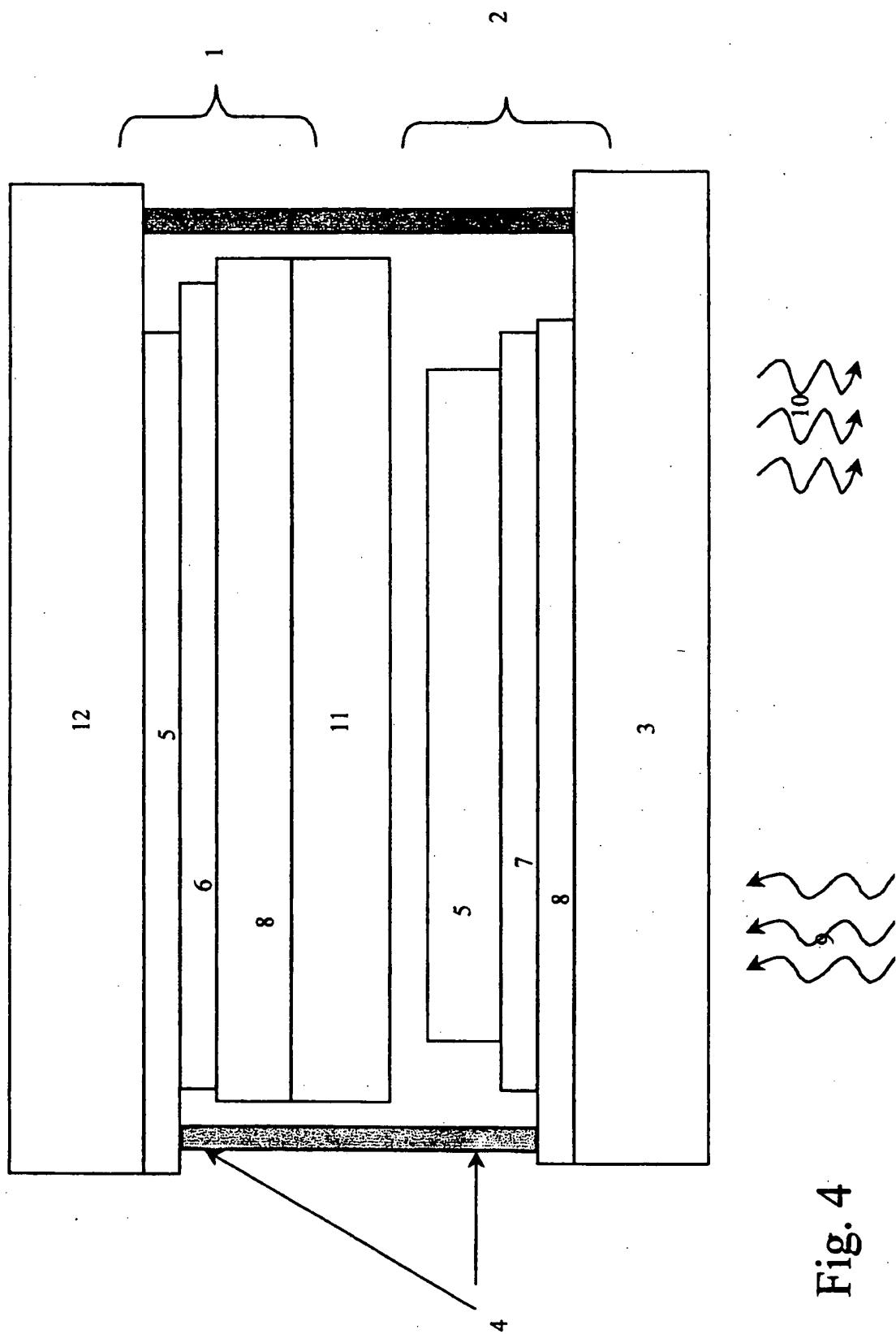
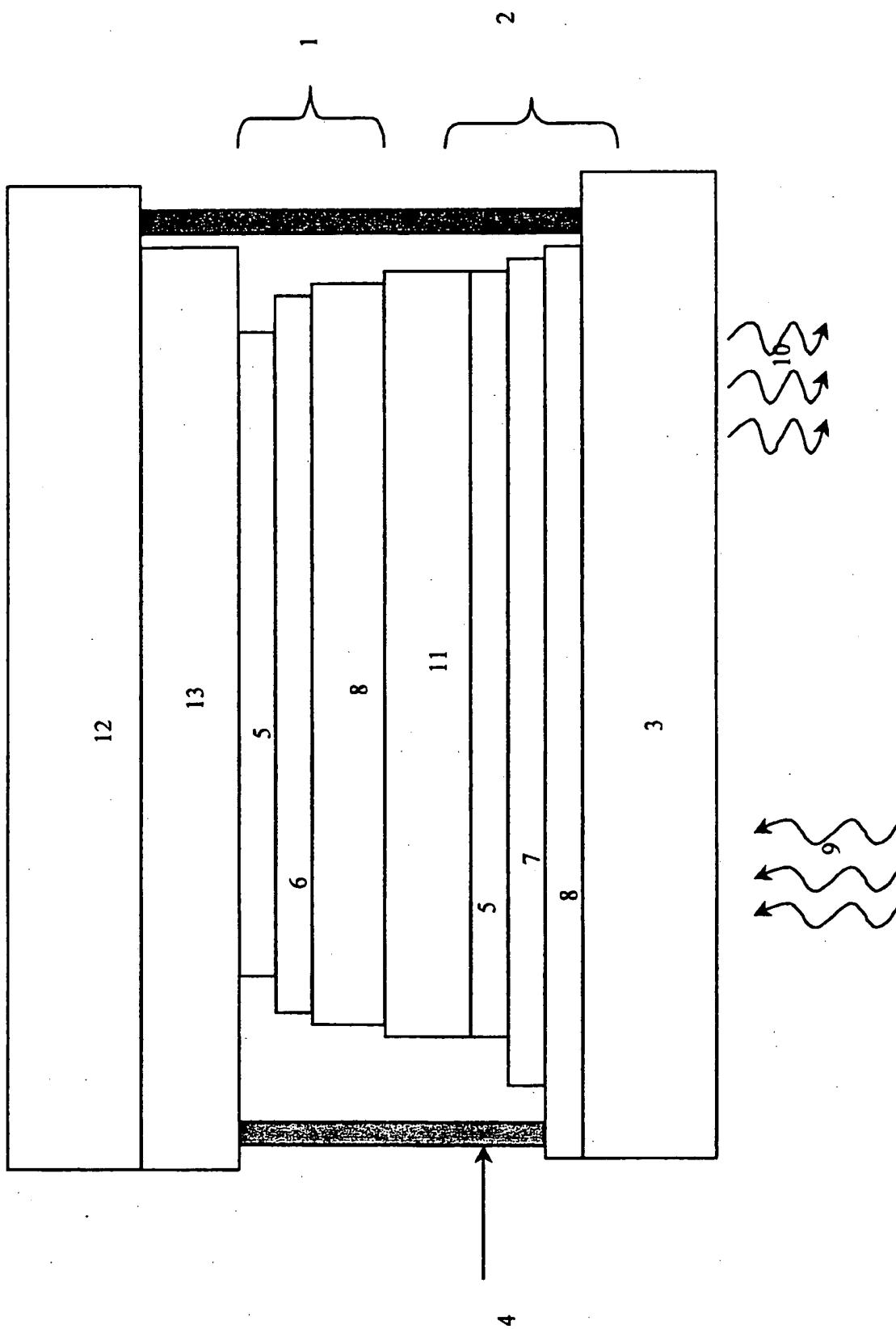


Fig. 4

Fig. 5



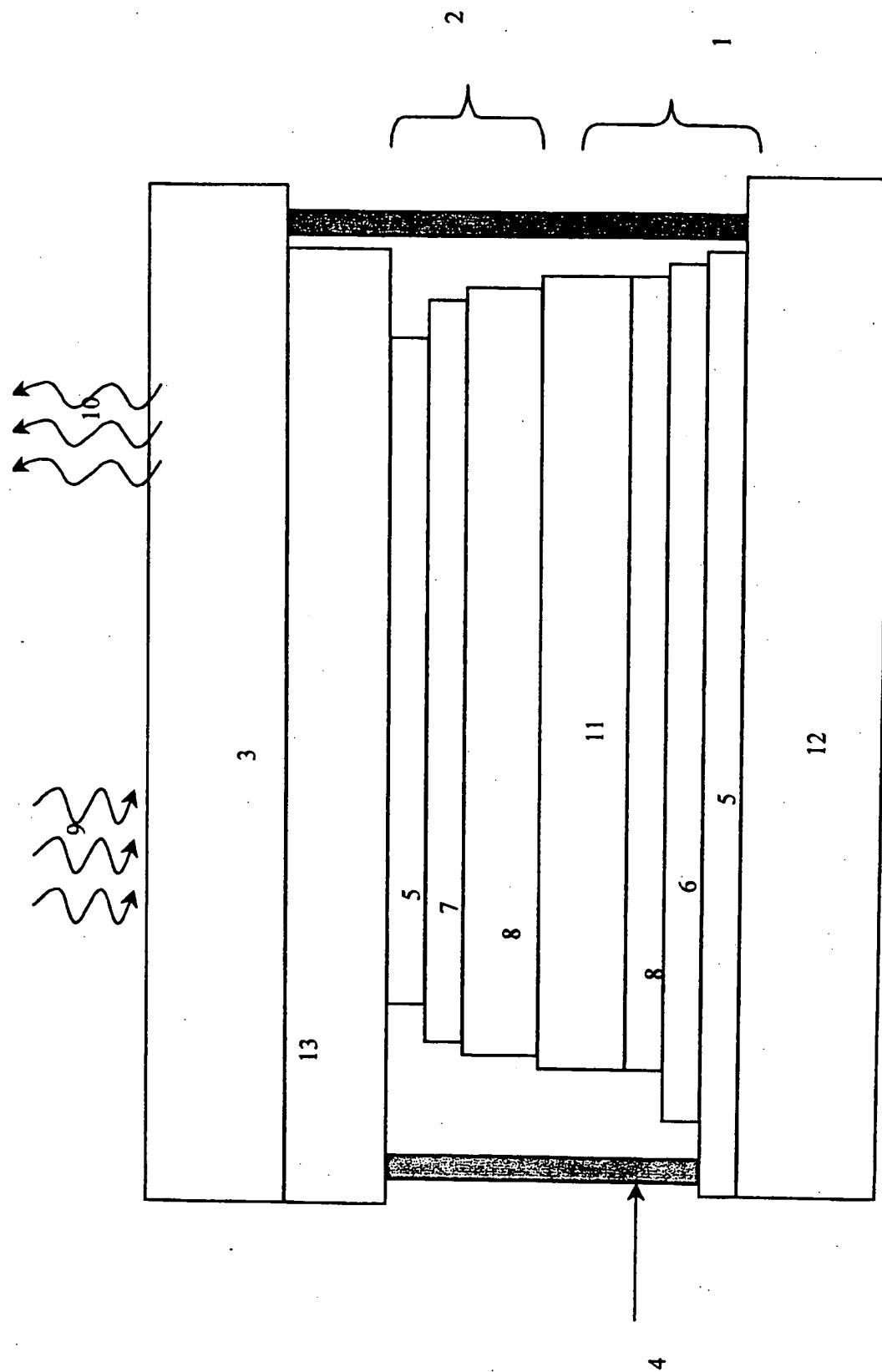


Fig. 6